IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of:

Art Unit: Not assigned

Tetsuya HIDAKA et al.

Examiner: Not assigned

Serial No: Not assigned

Filed: March 24, 2004

For: R-T-B System Rare Earth Permanent Magnet

TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

Mail Stop PATENT APPLICATION Commissioner for Patents P.O. Box 1450 Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Enclosed herewith are certified copies of Japanese patent application Nos. 2003-088195 filed March 27, 2003 and 2004-003435 filed January 8, 2004, from which priority is claimed under 35 U.S.C. § 119 and Rule 55.

Acknowledgment of the priority document(s) is respectfully requested to ensure that the subject information appears on the printed patent.

Respectfully submitted,

HOGAN HARTSON L.L.P.

By: Anthony I

Anthony J. Orler Registration No. 41,232 Attorney for Applicant(s)

500 South Grand Avenue, Suite 1900

Los Angeles, California 90071 Telephone: 213-337-6700

Facsimile: 213-337-6701

Date: March 24, 2004

日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2003年 3月27日

出 願 番 号 Application Number:

特願2003-088195

[ST. 10/C]:

[JP2003-088195]

出 願 人 Applicant(s):

TDK株式会社

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 2月19日





【書類名】 特許願

【整理番号】 P-05007

【提出日】 平成15年 3月27日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B22F

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケ

イ株式会社内

【氏名】 日▲高▼ 徹也

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケ

イ株式会社内

【氏名】 坂元 一也

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケ

イ株式会社内

【特許出願人】

【識別番号】 000003067

【氏名又は名称】 ティーディーケイ株式会社

【代理人】

【識別番号】 100100077

【弁理士】

【氏名又は名称】 大場 充

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 085823

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

ページ: 2/E

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 R-T-B系希土類永久磁石

【特許請求の範囲】

【請求項1】 R₂T₁₄B相(ただし、RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe又はFe及びCoを必須とする1種又は2種以上の遷移金属元素)からなる主相と、

前記主相よりRを多く含む粒界相とを備えた焼結体からなり、

Pc (パーミアンス係数)が2において、

240 kA/mの有効磁場(ただし、有効磁場=印加磁場-反磁場)を印加したときのトータルフラックスを f 1、

800kA/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf2、

2000kA/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf3とすると、

着磁率 a $(= f 1 / f 3 \times 100)$ が 40%以上、かつ、

着磁率 b $(= f 2 / f 3 \times 100)$ が 90%以上であることを特徴とする R - T - B 系希土類永久磁石。

【請求項2】 保磁力(HcJ)が1672kA/m以下であることを特徴とする請求項1に記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項3】 残留磁束密度(Br)が1.35T以上、最大磁気エネルギー積((BH)max)が350kJ/m³以上、角形比(Hk/HcJ)が95%以上であることを特徴とする請求項1又は2に記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項4】 前記焼結体中の平均結晶粒径が3.3~4.3μmであることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項5】 前記焼結体中の酸素量が1500ppm以下であることを特徴とする請求項1~4のいずれかに記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項6】 前記焼結体中に Z r が分散していることを特徴とする請求項 1~5のいずれかに記載の R-T-B系希土類永久磁石。

【請求項7】 R:25~35wt% (ただし、RはYを含む希土類元素の

1種又は2種以上)、B:0.5~4.5 w t %、A l 及びC u の l 種又は2種:0.02~0.5 w t %、Z r:0.03~0.25 w t %、C o:2 w t %以下 (0を含まず)、残部実質的にF e からなる組成を有する焼結体からなり、前記焼結体中の酸素量が2000p p m以下、前記焼結体の平均結晶粒径が3.3~4.3 μ mであることを特徴とするR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項8】 Rとして $0.1\sim4.0$ wt%のDyを含むことを特徴とする請求項7に記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項9】 Zrは、前記焼結体の結晶粒界に分散していることを特徴とする請求項7又は8に記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項10】 多極着磁される磁石であることを特徴とする請求項7~9 のいずれかに記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【請求項11】 前記焼結体中の窒素量が20~600ppm、炭素量が1500ppm以下であることを特徴とする請求項7~10のいずれかに記載のR-T-B系希土類永久磁石。

【発明の詳細な説明】

 $[0\ 0\ 0\ 1\]$

【発明の属する技術分野】

本発明は、R-T-B系希土類永久磁石に関し、特に着磁特性の高いR-T-B系希土類永久磁石に関する。

[0002]

【従来の技術】

希土類磁石の中でもR-T-B系希土類永久磁石は、磁気特性に優れていること、主成分であるNdが資源的に豊富で比較的安価であることから、各種電気機器に採用されている。

これまで、R-T-B系希土類永久磁石の磁気特性、具体的には残留磁束密度、保磁力あるいは最大磁気エネルギー積の向上のための研究、開発が主になされてきた。しかし、近時、着磁特性に着目した研究、開発が行なわれている。R-T-B系希土類永久磁石は、フェライト磁石に比べて高い着磁磁界を必要とする。例えば、リング状のR-T-B系希土類永久磁石をモータの回転子として用い

る場合に、モータにR-T-B系希土類永久磁石を組み込んだ後にリング状のR-T-B系希土類永久磁石に捲き回したモータ用コイルを用いて着磁させることがある。モータが小型の場合には所定の捲き回し数を得るためにコイルの線径が細くなり、大電流を流すことができず、そのためにR-T-B系希土類永久磁石に対して十分な着磁磁界を印加することができない。したがって、以上のような用途に用いられるR-T-B系希土類永久磁石としては、低い着磁磁界で可能な限り高い着磁特性を有することが要求される。

[0003]

[0004]

【特許文献1】

特開2002-356701号公報(特許請求の範囲)

[0005]

【発明が解決しようとする課題】

特開2002-356701号公報に開示された技術によれば、磁気特性を低下させることなく着磁特性を改善することができる。しかし、50%程度の着磁率を得るために0.8MA/m(10kOe)程度の着磁磁界が必要であり、さらに低い着磁磁界で50%程度の着磁率を得ることが望まれる。

一方で、本発明者等の検討によると、低い磁界でより高い着磁率が得られるR -T-B系希土類永久磁石は、着磁率の着磁磁界による変動を表す着磁特性曲線 がなだらかな傾斜を示す傾向にある。つまり、100%近傍の着磁率に到達する までにより大きな着磁磁界が必要であり、これは望ましいことではない。

[0006]

本発明は、このような技術的課題に基づいてなされたもので、低い着磁磁界でより高い着磁率を得るとともに、100%近傍、例えば90%程度の着磁率に到達するまでより急峻な着磁特性曲線を示すことのできるR-T-B系希土類永久磁石を提供することを目的とする。

[0007]

【課題を解決するための手段】

かかる目的のもと、本発明者はR2T14B相からなる主相と、主相よりRを多く含む粒界相とを備えた焼結体からなる磁石について検討を行なった。その結果、焼結体の平均結晶粒径及び含有酸素量を制御すること、さらにZr を含有させることにより、従来に無い優れた着磁特性が得られることを確認した。すなわち本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、R2T14B相(ただし、RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe又はFe及びCo を必須とする1種又は2種以上の遷移金属元素)からなる主相と、主相よりRを多く含む粒界相とを備えた焼結体からなり、Pc (パーミアンス係数)が2において、240kA/m(3kOe)の有効磁場(ただし、有効磁場=印加磁場-反磁場)を印加したときのトータルフラックスをf2、2000kA/m(25kOe)の有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf2、2000kA/m(25kOe)の有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf2、2000kA/m(25kOe)の有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf3とすると、着磁率a(=f1/f3×100)が40%以上、かつ、着磁率b(=f2/f3×100)が90%以上の着磁特性を有していることを特徴としている。

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、Pcが0.5において、着磁率aが30%以上で、かつ、着磁率bが80%以上であり、さらにPcが1において、着磁率aが35%以上で、かつ、着磁率bが90%以上という高い着磁特性を実現することができる。

[0008]

ところで従来から、R-T-B系希土類永久磁石は、高い保磁力を得ようとする場合には残留磁束密度が低くなり、逆に高い残留磁束密度を得ようとする場合

には保磁力が低くなることが知られている。例えば、希土類元素として含有されるDyの量を調整すること、具体的には高保磁力を得たいときにはDy量を増やし、高残留磁東密度を得たいときにはDy量を減らすことにより、所望する特性を得ていた。そして、高い保磁力を有するR-T-B系希土類永久磁石は高い着磁特性が得られることは概念的には知られていた。ところが、本発明によれば、保磁力(HcJ)が1672kA/m(210e)以下と比較的低いR-T-B系希土類永久磁石に対しても着磁特性を向上することができるという利点がある。このR-T-B系希土類永久磁石は、残留磁束密度(Br)が1.35T以上、最大磁気エネルギー積((BH)max)が350kJ/m³以上、角形比(Hk/HcJ)が95%以上の特性を確保することができる。

[0009]

本発明のR-T-B系希土類永久磁石において、焼結体中の酸素量が1500 $ppm以下であること、焼結体中の平均結晶粒径が<math>3.3\sim4.3\mu$ mであることが、以上の優れた着磁特性を得るために重要である。さらに、焼結体中にZrが分散していることが、以上の優れた着磁特性を得るために重要である。

[0010]

本発明は、R:25~35wt%(ただし、RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上)、B:0.5~4.5wt%、A1及びCuの1種又は2種:0.02~0.5wt%、Zr:0.03~0.25wt%、Co:2wt%以下(0を含まず)、残部実質的にFeからなる組成を有する焼結体からなるR-T-B系希土類永久磁石に適用することが望ましい。また、保磁力や温度特性の向上、生産性の向上、低コスト化などのためにTi、V、Cr、Mn、Bi、Nb、Ta、Mo、W、Sb、Ge、Sn、Ni、Si、Hf、Ga等を1種以上添加してもよい。

このR-T-B系希土類永久磁石において、焼結体中の酸素量を2000ppm以下、焼結体の平均結晶粒径を $3.3\sim4.3\mu$ mとすることにより、優れた着磁特性を得ることができる。

$[0\ 0\ 1\ 1]$

本発明によるR-T-B系希土類永久磁石は、Rとして0.1~4.0wt%

のDyを含むことができる。

また、本発明によるR-T-B系希土類永久磁石はZrを含むが、このZrは 少なくとも焼結体の結晶粒界に分散する。

本発明によるR-T-B系希土類永久磁石は、種々の形態の磁石に用いることができるが、多極着磁される磁石に用いた場合にその効果を顕著に発揮することができる。

本発明によるR-T-B系希土類永久磁石は、高い磁気特性を有するためには、焼結体中の窒素量を20~600ppm、炭素量が1500ppm以下に規制することが望ましい。

[0012]

【発明の実施の形態】

以下、本発明によるR-T-B系希土類永久磁石及びその製造方法について説明する。

<着磁特性>

本発明によって得られるR-T-B系希土類永久磁石は、よく知られているように、 $R_2T_{14}B$ 結晶粒(RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe 又はFe 及びCo を主体とする遷移金属元素の1種以上)からなる主相と、この主相よりRを多く含む粒界相とを少なくとも含んでいる。

そして、Pc(パーミアンス係数)が2において、240kA/mの有効磁場(ただし、有効磁場=印加磁場-反磁場)を印加したときのトータルフラックスをf1、800kA/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf2、2000kA/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf3とすると、着磁率a(=f1/f3×100)が40%以上、かつ、着磁率b(=f2/f3×100)が90%以上である。なお、本発明におけるPcは、「希土類永久磁石」俵好夫、大橋健共著(森北出版)第146頁の図5-4に基づいて定めている。また、着磁率は以下によって測定した。評価する磁石をポールピースに挟み込んで閉磁路を形成した後、電磁石に電流を流し着磁を行なった。この場合、印加磁場=有効磁場となる。着磁後、フラックスメータによりトータルフラックスを測定した。

[0013]

ここで着磁特性についていえば、前述したように、低磁界でより大きな着磁率を有し、かつ着磁特性曲線がより低磁界側に存在することができれば理想的である。ところが、従来、この両者を満足することは容易ではなかった。しかるに、本発明では、着磁率 a (= f 1/f 3×100)が40%以上、かつ、着磁率 b (= f 2/f 3×100)が90%以上という従来にはない着磁特性を有する永久磁石を提供する。240kA/m~800kA/mの範囲においても、後述する実施例に示すように、本発明によるR-T-B系希土類永久磁石は、優れた着磁率を有している。

[0014]

以上の着磁特性を得るためには、焼結体の結晶粒が平均粒径で $3.3\sim4.3$ μ m という限られた範囲にあることが重要である。後述する第1 実施例で説明するように、結晶粒の平均粒径が 3.3μ m 未満あるいは 4.3μ m を超えると、上述した着磁率a、着磁率b を得ることができない。

また、以上の着磁特性を得るための組成的な要因としては、焼結体中の酸素含有量を規制すること及びZrを含むことが掲げられる。この点については、以下の<化学組成>の欄で述べることにする。

[0015]

<化学組成>

次に、本発明によるR-T-B系希土類永久磁石の望ましい化学組成について 説明する。ここでいう化学組成は焼結後における最終組成をいう。

$[0\ 0\ 1\ 6]$

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、希土類元素 (R) を25~35wt %含有する。

ここで、希土類元素は、Yを含む希土類元素(La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Yb及びLu)の1種又は2種以上である。希土類元素の量が2.5w t %未満であると、R-T-B系希土類永久磁石の主相となるR $_2$ T $_1$ 4B結晶粒の生成が十分ではなく軟磁性を持つ $_\alpha$ -Feなどが析出し、保磁力が著しく低下する。一方、希土類元素が3.5w t %を超えると

主相である $R_2T_{14}B$ 結晶粒の体積比率が低下し、残留磁束密度が低下する。また希土類元素が酸素と反応し、含有する酸素量が増え、これに伴い保磁力発生に有効な R- リッチ相が減少し、保磁力の低下を招く。したがって、希土類元素の量は $25 \sim 35$ w t %とする。望ましい希土類元素の量は $28 \sim 33$ w t %、さらに望ましい希土類元素の量は $29 \sim 32$ w t %である。

Ndは資源的に豊富で比較的安価であることから、希土類元素としての主成分をNdとすることが好ましい。またDyは異方性磁界が大きく、保磁力を向上させる上で有効である。よって、希土類元素としてNd及びDyを選択し、Nd及びDyの合計を25~33wt%とすることが望ましい。この範囲において、Dyの量は0.1~12wt%が望ましい。Dyは、残留磁束密度及び保磁力のいずれを重視するかによって上記範囲内においてその量を定めることが望ましい。つまり、高い残留磁束密度を得たい場合にはDy量を0.1~4.0wt%とし、1600kA/mを超える高い保磁力を得たい場合にはDy量を4.0~12wt%とすることが望ましい。

[0017]

本発明は、前述したように、保磁力が比較的低いタイプのR-T-B系希土類永久磁石においても優れた着磁特性を有している点に特徴がある。したがって、Dy量が0.1~4.0wt%と低い場合に本発明の効果が十分発揮することができる。Dyは希土類元素全体に対して10wt%以下の範囲で添加され、その場合の保磁力(HcJ)は1672kA/m以下、さらには1433kA/m以下となる。

[0018]

また、本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、ホウ素(B)を $0.5\sim4.5$ w t %含有する。Bが0.5 w t %未満の場合には高い保磁力を得ることができない。ただし、Bが4.5 w t %を超えると残留磁束密度が低下する傾向がある。したがって、上限を4.5 w t %とする。望ましいBの量は $0.5\sim1.5$ w t %、さらに望ましいBの量は $0.8\sim1.2$ w t %である。

[0019]

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、AI及びCuの1種又は2種を0.

02~0.5 w t %の範囲で含有することができる。この範囲でA 1 及びC u の 1 種又は 2 種を含有させることにより、得られる永久磁石の高保磁力化、温度特性の改善が可能となる。A 1 を添加する場合において、望ましいA 1 の量は 0.03~0.3 w t %、さらに望ましいA 1 の量は 0.05~0.25 w t %である。また、C u を添加する場合において、望ましいC u の量は 0.15 w t %以下(0を含まず)、さらに望ましいC u の量は 0.03~0.08 w t %である。

[0020]

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、Zrを0.03~0.25wt%含有することが重要である。ZrはR-T-B系希土類永久磁石の着磁特性向上を図るために有効である。また、R-T-B系希土類永久磁石の磁気特性を向上するために酸素含有量を低減する際に、焼結過程での結晶粒の異常成長を抑制する効果を発揮し、焼結体の組織を均一かつ微細にする。したがって、Zrは酸素量が低い場合にその効果が顕著になる。Zrの望ましい量は0.05~0.25wt%、さらに望ましい量は0.1~0.2wt%である。

[0021]

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、その酸素量を2000ppm以下とする。酸素量が多いと非磁性成分である酸化物相が増大して、磁気特性を低下させる。そこで本発明では、焼結体中に含まれる酸素量を、2000ppm以下、望ましくは1500ppm以下、さらに望ましくは1000ppm以下とする。ただし、単純に酸素量を低下させたのでは、粒成長抑制効果を有していた酸化物相の量が不足し、焼結時に十分な密度上昇を得る過程で異常粒成長が容易に起こる。そこで、本発明では、着磁特性向上効果とともに異常粒成長抑制効果を有するZrを所定量添加する。

[0022]

本発明のR-T-B系希土類永久磁石は、 $Co \, \epsilon \, 2 \, w \, t \, %$ 以下($0 \, \epsilon \, \epsilon \, \epsilon \, t \, \tilde{s}$)、望ましくは $0.1 \, - 1 \, w \, t \, \%$ 、さらに望ましくは $0.3 \, - \, 0.7 \, w \, t \, \%$ 含有する。 $Co \, t \, t \, s \, t \, d \, t \, s \, t \, d \, t$

[0023]

<多極着磁磁石>

本発明は、前述したように、多極着磁が施される磁石に適用することが望ましい。

多極着磁される磁石としては、モータ用に用いられるラジアル異方性又は極異方性リング状磁石、CD、DVD等の機器のピックアップ駆動用に用いられる直方体状磁石、VCM(Voice Coil Motor)用の扇状磁石がある。これらの多極着磁磁石は、N・Sの極性を複数有している。

[0024]

以上の多極着磁磁石に本発明のR-T-B系希土類永久磁石を適用すると、ニュートラルゾーンの幅を狭くすることができる。そのために、トータルフラックス量が増加し、例えばモータに用いるものであればモータの特性を向上させることができる。ここで、ニュートラルゾーンとは、磁石を着磁した際に、極性(N・S)が反転する境界においてN又はSのどちらにも着磁されない領域をいう。特に、サイズの小さな磁石や極数の多い磁石においては、ニュートラルゾーンの占める割合が増大する。したがって、本発明による着磁特性の優れるR-T-B系希土類永久磁石を多極着磁に供することにより、ニュートラルゾーンの幅を狭くすることができ、ひいては当該磁石が用いられるモータの特性を向上することができる。

[0025]

<製造方法>

次に、本発明によるR-T-B系希土類永久磁石の好適な製造方法について説明する。

本実施の形態では、R2T14B結晶粒を主体とする合金(低R合金)と、低R 合金よりRを多く含む合金(高R合金)とを用いる所謂混合法で本発明にかかる 希土類永久磁石を製造する方法について示す。ただし、本発明によるR-T-B 系希土類永久磁石は、単一の原料合金を用いて製造することができることはいう までもない。

[0026]

はじめに、真空又は不活性ガス、好ましくはAr雰囲気中でストリップキャス

ティングすることにより、低R合金及び高R合金を得る。低R合金には、希土類元素、Fe、Co及びBの他に、Cu及びAlを含有させることができる。また、高R合金には、希土類元素、Fe、Co及びBの他に、Cu及びAlを含有させることができる。さらに、Zrを添加する場合には、低R合金に含有させることが望ましい。

[0027]

低R合金及び高R合金が作製された後、これらの原料合金は別々に又は一緒に 粉砕される。粉砕工程には、粗粉砕工程と微粉砕工程とがある。まず、原料合金 を、それぞれ粒径数百μm程度になるまで粗粉砕する。粗粉砕は、スタンプミル 、ジョークラッシャー、ブラウンミル等を用い、不活性ガス雰囲気中にて行なう ことが望ましい。粗粉砕性を向上させるために、水素を吸蔵させた後、粗粉砕を 行なうことが効果的である。

粗粉砕工程後、微粉砕工程に移る。微粉砕は、主にジェットミルが用いられ、 粒径数百 μ m程度の粗粉砕粉末が、平均粒径2.5 \sim 6 μ m、好ましくは3 \sim 5 μ mになるまで行われる。ジェットミルは、高圧の不活性ガス(例えば窒素ガス)を狭いノズルより開放して高速のガス流を発生させ、この高速のガス流により 粗粉砕粉末を加速し、粗粉砕粉末同士の衝突やターゲットあるいは容器壁との衝 突を発生させて粉砕する方法である。

[0028]

2種の合金の混合は、基本的に限定されるものではないが、微粉砕工程において低R合金及び高R合金を別々に粉砕した場合には、微粉砕された低R合金粉末及び高R合金粉末とを窒素雰囲気中で混合する。低R合金粉末及び高R合金粉末の混合比率は、重量比で80:20~97:3程度とすればよい。低R合金及び高R合金を一緒に粉砕する場合の混合比率も同様である。微粉砕時に、ステアリン酸亜鉛等の粉砕助剤を0.01~0.3 w t %程度添加することにより、成形時に配向性の高い微粉を得ることができる。

次いで、低R合金粉末及び高R合金粉末からなる混合粉末を、電磁石に抱かれた金型内に充填し、磁場印加によってその結晶軸を配向させた状態で磁場中成形する。この磁場中成形は、960~1360kA/m(12~17kOe)の磁

場中で、 $0.7 \sim 1.5 \text{ t}/\text{c} \text{ m}^2$ 前後の圧力で行なえばよい。また、磁場印加方法は前述の他に、パルス印加磁場を用いてもよい。

[0029]

磁場中成形後、その成形体を真空又は不活性ガス雰囲気中で焼結する。焼結温度は、組成、粉砕方法、粒度と粒度分布の違い等、諸条件により調整する必要があるが、1000~1100℃で1~5時間程度焼結すればよい。焼結工程の前に成形体に含まれている粉砕助剤、ガスなどを除去する処理を行なってもよい。焼結後、得られた焼結体に時効処理を施すことができる。この工程は、保磁力を制御する重要な工程である。時効処理を2段に分けて行なう場合には、800℃近傍、600℃近傍での所定時間の保持が有効である。800℃近傍での熱処理を焼結後に行なうと、保磁力が増大するため、混合法においては特に有効である。また、600℃近傍の熱処理で保磁力が大きく増加するため、時効処理を1段で行なう場合には、600℃近傍の時効処理を施すとよい。

[0030]

以下本発明を具体的な実施例に基づいて説明する。

<第1実施例>

ストリップキャスト法により、表1に示す組成の原料合金(低R合金及び高R合金)を作成した。

得られた各々の原料合金に対して室温にて水素を吸蔵させた後、Ar雰囲気中で600℃×1時間の脱水素を行なう、水素粉砕処理を行なった。

高磁気特性を得るために、本実験では焼結体酸素量を1000ppm以下に抑えるために、水素粉砕(粉砕処理後の回収)から焼結(焼結炉に投入する)までの各工程の雰囲気を100ppm未満の酸素濃度に抑えてある。

$[0\ 0\ 3\ 1]$

通常、粗粉砕と微粉砕による2段粉砕を行っているが、本実施例では粗粉砕工程を省いている。

水素粉砕された低 R 合金と高 R 合金とを 9.0:1.0 の比率で混合するとともに、粉砕助剤としてオレイン酸アミドを 0.1%添加した後にジェットミルにて微粉砕を行ない、平均粒径(D) 3.82μ m、 4.00μ m、 4.15μ m、4

. 29μ m及び4. 64μ mの5 種類の微粉末を得た。なお、粒径の測定はレーザ回折式粒度分布計(Malvern Instruments社製Mastersizer)により行なった。また、低R合金及び高R合金を混合して得られる最終組成を表1に示す。

[0032]

得られた微粉末を1320kA/m(16.5kOe)の磁場中で加圧成形を行って成形体を得た。成形体の密度は $4.2Mg/m^3$ である。

得られた成形体を真空中において1060℃で4時間焼結した後、急冷した。 次いで得られた焼結体に900℃×1時間と530℃×2.5時間(ともにAr雰囲気中)の2段時効処理を施した。

[0033]

【表1】

								_	wt. %
	Nd	Pr	Dу	Co	Cu	Al	В	Zr	Fe
低R合金	23.0	6.1	0.6		0.05	0.20	1.1	0.16	bal.
髙R合金	40.3		1	5.1	0.05	0.20		-	bal.
最終組成	24.5	5.5	0.5	0.5	0.05	0.20	1.0	0.15	bal.

[0034]

得られた永久磁石についてB-Hトレーサにより磁気特性を測定するとともに、焼結体の密度、平均結晶粒径、酸素含有量、窒素含有量及び炭素含有量を測定した。その結果を表2に示す。表2において、dは焼結体の平均結晶粒径、ρは焼結体の密度、Brは残留磁束密度、HcJは保磁力、(BH) maxは最大磁気エネルギー積を、Hk/HcJは角形比を示す。なお、角形比(Hk/HcJ)は磁石性能の指標となるものであり、磁気ヒステリシスループの第2象限における角張の度合いを表す。またHkは、磁気ヒステリシスループの第2象限において、磁束密度が残留磁束密度の90%になるときの外部磁界強度である。焼結体の平均結晶粒径は、焼結体の研磨面を簡易偏光顕微鏡(オリンパス光学工業(株)製BX60M)で観察し、それを画像処理装置(旭化成工業(株)製IP-1000)にて評価した。この評価により、粒子面積が得られるので、それを円相当径に換算して結晶粒径とした。

[0035]

表2に示すように、試料1~5のいずれのR-T-B系希土類永久磁石も1.4 T以上の残留磁東密度、1000kA/m以上の保磁力、400kJ/m³近 傍又はそれ以上という高い最大磁気エネルギー積を有していることがわかる。また、いずれのR-T-B系希土類永久磁石も酸素量が1000ppm以下、窒素量が500ppm以下、炭素量が1000ppm以下と、不純物量が低いレベルにあることがわかる。

[0036]

【表2】

試料	d	ρ	Br	HcJ	(BH)max	Hk/HcJ	O ₂	N ₂	С
3444	[µm]	$[Mg/m^3]$	[T]	[kA/m]	[kJ/m³]	[%]	[ppm]	[ppm]	[wt%]
1	3.2	7.524	1.441	1120.2	399.6	97.82	760	490	0.075
2	3.5	7.526	1.443	1013.5	400.6	97.36	700	410	0.071
3	3.7	7.525	1.442	1099.7	400.3	97.88	440	380	0.081
4	4.1	7.523	1.442	1070.8	400.1	97.67	570	390	0.071
5	4.4	7.528	1.439	1059.6	398.5	97.95	750	270	0.081

[0037]

次に、試料 $1\sim5$ のR-T-B系希土類永久磁石について、着磁率(Pc=2)を測定した。その結果を表3及び図1に示す。表3及び図1に示すように、平均結晶粒径が最も小さい試料1(3. $2\,\mu$ m)及び最も大きい試料5(4. $4\,\mu$ m)のR-T-B系希土類永久磁石は、低い着磁磁界における着磁率が低いことがわかる。

[0038]

【表3】

着磁			着磁率(%)		
磁界	試料1	試料2	試料3	試料4	試料5
(kA/m)	$(d=3.2 \mu m)$	$(d=3.5 \mu m)$	$(d=3.7 \mu m)$	$(d=4.1 \mu m)$	$(d=4.4 \mu m)$
0	0	0	0	0	0
80	8.2	10.0	10.2	9.6	7.4
160	18.1	28.9	27.9	28.9	17.8
240	36.7	49.3	49.1	49.5	38.0
320	49.7	66.7	67.1	68.5	54.5
400	60.9	75.6	75.7	77.5	65.8
480	69.5	81.1	81.0	82.4	73.2
560	74.1	84.6	84.8	85.4	78.3
640	79.3	88.0	88.9	89.3	82.5
800	86.9	93.5	93.2	93.6	89.5
960	93.2	96.4	96.8	97.3	94.8
1200	97.7	98.1	99.1	99.1	98.6
1600	99.5	99.1	99.5	100	99.5
2000	100	100	100	100	100

d=平均結晶粒径

[0039]

表4には、試料1~5のR-T-B系希土類永久磁石が40%、50%、60%、70%、80%、90%及び95%の着磁率を得るために必要な着磁磁界の値を示した。表4に示すように、試料2~4では240kA/m(3kOe)の着磁磁界で40%の着磁率を得ることができるのに対して、試料1及び5では320kA/m(4kOe)の着磁磁界が必要である。同様に、試料2~4は50%、60%、70%、80%、90%及び95%の各着磁率を試料1及び5に比べて低い着磁磁界で得ることができる。

以上より、焼結体の平均結晶粒径が $3.3\sim4.3\mu$ m、望ましくは $3.5\sim4.0\mu$ mの範囲とすることにより、240kA/mという低い着磁磁界で40%以上の着磁率を得ることができるとともに、90%の着磁率を得るのにより低い着磁磁界で足りることがわかる。

[0040]

【表4】

着磁率		着	磁磁界(kA/	m)		
(%)	試料1	試料2	試料3	試料4	試料5	
	$(d=3.2 \mum)$	$(d=3.5 \mu m)$	$(d=3.7 \mu m)$	$(d=4.1 \mu m)$	$(d=4.4 \mu m)$	
40	320	240	240	240		
50	400	320	320	320	320	
60	400	320	320	320	400	
70	560	400	400	400	480	
80	800	480	480	480	640	
90	960	800	800	800	960	
95	1200	960	960	960	1200	

d=平均結晶粒径

[0041]

<第2実施例>

表5に示す組成の原料合金を用いること及び微粉末を作成する際の粉砕ガス(窒素)中の酸素含有量を制御することによって最終の焼結体の酸素含有量を変動させた以外は第1実施例と同様にして3種類のR-T-B系希土類永久磁石(試料6~8)を得た。得られたR-T-B系希土類永久磁石について、第1実施例と同様に磁気特性等を測定した。その結果を表6に示す。なお、表6のTsは焼結温度を意味しており、他の記号は表2と同様である。

[0042]

【表 5】

									wt. %
	Nd	Pr	Dу	Co	Cu	Al	В	Zr	Fe
低R合金	23.0	6.1	0.6		0.05	0.20	1.1	0.06	bal.
高R合金	40.3	_	-	5.1	0.05	0.20	_	-	bal.
最終組成	24.5	5.5	0.5	0.5	0.05	0.20	1.0	0.05	bal.

[0043]

【表 6】

試料	Ts	q	ρ	Br	HcJ	(BH)max	Hk/HcJ	O ₂	N ₂	С
0247	(°C)	[µ m]	[Mg/m³]	[T]	[kA/m]	[kJ/m³]	[%]	[ppm]	[ppm]	[wt%]
6	1010	4.4	7.53	1.445	1076.2	403.2	96.68	580	350	0.071
7	1050	4.1	7.54	1.442	1082.6	400.5	98.02	2130	270	0.077
8	1070	4.3	7.55	1.438	1055.8	398.3	97.65	3430	270	0.075

[0044]

次に、試料6~8のR-T-B系希土類永久磁石について、着磁率(Pc=2)を測定した。その結果を表7及び図2に示す。表7及び図2に示すように、焼結体の酸素量が580ppmと最も低い試料6のR-T-B系希土類永久磁石が低い着磁磁界における着磁率が高いことがわかる。つまり、試料6は、240kA/m(3kOe)の着磁磁界で40%以上の着磁率、400kA/m(5kOe)の着磁磁界で70%以上の着磁率、800kA/m(10kOe)の着磁磁界で95%以上の着磁率を得ることができる。これに対して、試料7は60%程度の着磁率を得るために400kA/m(5kOe)の着磁磁界が必要であり、試料8は400kA/m(5kOe)の着磁磁界を印加しても55%の着磁率しか得ることができない。

[0045]

【表7】

着磁 磁界		青磁率(%)
(kA/m)	試料6	試料7	試料8
0	0	0	0
80	8.0	7.8	6.6
160	23.8	14.7	13.0
240	41.4	28.9	24.1
320	61.6	47.2	40.9
400	73.7	62.5	55.7
800	95.4	93.8	91.9
1600	100	100	100
2000	100	100	100

[0046]

以上のように、着磁率はR-T-B系希土類永久磁石に含まれる酸素の量と関連があり、低い着磁磁界から高い着磁磁界まで着磁率を向上させるためには、酸素含有量は2000ppm以下、さらには1000ppm以下とすることが望ましい。

[0047]

<第3実施例>

表8に示す原料合金を用いた以外は第1実施例と同様にして3種類のR-T-B系希土類永久磁石(試料9~11)を得た。得られたR-T-B系希土類永久磁石について、第1実施例と同様に磁気特性等を測定した。その結果を表9に示す。なお、表9の記号は表6と同様である。

表9に示すように、M元素を含まない試料9は角形比が60.22%と低く、 実用的なR-T-B系希土類永久磁石になっていない。M元素としてZrを含む 試料10、Tiを含む試料11は、1.4 T以上の残留磁束密度、1100kA /m近傍の保磁力、400kJ/m³程度上という高い最大磁気エネルギー積を 有していることがわかる。

[0048]

試料9について組織観察を行なったところ、試料9は焼結体中に 100μ m程度まで異常に成長した結晶粒が観察された。これは、酸素含有量が2000ppm程度と低く、結晶粒成長を抑制していた酸化物の量が低減されたためである。この異常成長した結晶粒の存在が低い角形比の原因と推測される。

試料10及び11についても同様に組織観察を行なった。その結果、試料9で観察された異常成長した結晶粒は観察されなかった。試料10では2rが、また試料11ではTiが焼結体中、具体的には結晶粒界に分散していることが確認されており、2r又はTiが何らかの化合物を形成し、この化合物が結晶粒の異常成長を抑制しているものと解される。

[0049]

【表8】

	r									wt. %
試料		Nd	Pr	Dy	Co	Cu	Al	В	M(Zr,Ti)	Fe
	低R合金	23.0	6.1	0.55	_	0.05	0.20	1.1	_	bal.
9	高R合金	40.3	-	-	5.1	0.05	0.20	_	-	bal.
	最終組成	24.5	5.5	0.5	0.5	0.05	0.20	1.0	_	bal.
	低R合金	23.0	6.1	0.55		0.05	0.20	1.1	0.22(Zr)	bal.
10	髙R合金	40.3	-	-	5.1	0.05	0.20	_		bal.
	最終組成	24.5	5.5	0.5	0.5	0.05	0.20	1.0	0.20	bal.
ļ	低R合金	23.0	6.1	0.55	_	0.05	0.20	1.1	0.22(Ti)	bal.
11	高R合金	40.3	-	-	5.1	0.05	0.20	_	-	bal.
	最終組成	24.5	5.5	0.5	0.5	0.05	0.20	1.0	0.20	bal.

[0050]

【表9】

試料	Ts	d	ρ	Br	HcJ	(BH)max	Hk/HcJ	O ₂	N ₂	С
\vdash	(℃)	[µm]	[Mg/m ³]	[T]	[kA/m]	$[kJ/m^3]$	[%]	[ppm]	[ppm]	[wt%]
9	1070	4.3	7.53	1.435	1027.8	356.2	60.22	2000	320	0.069
10	1070	4.2	7.53	1.439	1088.3	400.2	98.16	1800	340	0.065
11	1070	4.1	7.53	1.432	1080.1	380.2	97.67	2300	240	0.072

[0051]

次に、試料9~11のR-T-B系希土類永久磁石について、着磁率(Pc=2)を測定した。その結果を表10及び図3に示す。表10及び図3に示すように、M元素として2rを含む試料10は、M元素を含まない試料9及びM元素と

してTiを含む試料11に比べて、低い着磁磁界においてより高い着磁率が得られることがわかる。つまり、試料10によると240kA/m(3kOe)の着磁磁界で40%を超える着磁率を得ることができるのに対して、試料9及び11では30%以下の着磁率しか得られない。

[0052]

【表10】

着磁 磁界	为	着磁率(%)									
(kA/m)	試料9	試料10	試料11								
0	0	0	0								
80	6.3	8.9	6.5								
160	10.9	20.3	13.6								
240	26.4	42.5	29.9								
320	48.2	61.0	49.8								
400	63.1	75.4	64.9								
800	93.6	97.2	95.6								
1600	100	100	100								
2000	100	100	100								

[0053]

以上より、M元素としてのZr及びTi はともに異常粒成長を抑制することにより磁気特性、特に角形比(Hk/HcJ)の向上にとって有効な元素であるが、Zrは磁気特性の向上のみならず、着磁特性の向上にとっても有効な元素であることがわかる。

[0054]

<第4実施例>

表11に示す原料合金を用いた以外は第1実施例と同様にして3種類のR-T-B系希土類永久磁石(試料12~14)を得た。試料12~14について、第1実施例と同様に磁気特性、焼結体の平均結晶粒径等を測定した。その結果を表12に示す。試料12及び試料13は、ほぼ同等の残留磁束密度(Br)を有し

ていることがわかる。また、試料 14 は、D y 量が試料 12 及び試料 13 より高いために、保磁力(H c J)が 1300 k A / m と高い値を示している。試料 $12 \sim 14$ の着磁率(P c =2)を第 1 実施例と同様に測定した。その結果を表 13 及び図 4 に示す。表 13 及び図 4 に示すように、2 r を含有せず酸素量が高い試料 13 は 240 k A / m の着磁磁界で 24 %程度の着磁率しか得られていないのに対して、2 r を含有する試料 12 及び試料 14 は 240 k A / m の着磁磁界で 25 0%以上の着磁率を得ることができる。

[0055]

【表11】

				,						wt. %
試料	ļ	Nd	Pr	Dy	Co	Cu	Al	В	Zr	Fe
	低R合金	22.7	6.1	1.1		0.05	0.20	1.1	0.15	bal.
12	高R合金	40.3		<u> </u>	5.1	0.05	0.20	_	_	bal.
	最終組成	24.5	5.5	1.0	0.5	0.05	0.20	1.0	0.14	bal.
	低R合金	29.6	6.8	0.13	_		0.22	1.1	_	bal.
13	高R合金	55.4		_	5.0	0.07	_	_	_	bal.
	最終組成	26.0	5.5	0.1	0.5	0.07	0.25	1.0		bal.
	低R合金	21.8	6.0	2.2	_	0.05	0.20	1.12	0.15	bal.
_	高R合金	40.3		_	5.1	0.05	0.20		_	bal.
	最終組成	23.2	5.5	2.0	0.5	0.05	0.20	1.00	0.14	bal.

[0056]

【表12】

試料	Ts	d	ρ	Br	HcJ	(BH)max	Hk/HcJ	O ₂	N ₂	С
DATT	(°C)	[μ m]	$[Mg/m^3]$	[T]	[kA/m]	$[kJ/m^3]$	[%]	[ppm]	[ppm]	[wt%]
12	1060	4.3	7.53	1.407	1115.2	382.7	97.80	720	390	0.080
13	1040	4.3	7.52	1.403	1110.3	381.9	98.30	4800	120	0.080
14	1060	4.1	7.51	1.388	1335.1	367.3	98.34	830	410	0.090

[0057]

【表13】

着磁	着磁率(%)					
磁界	試料12	試料13	試料14			
0	0	0	0			
80	8.6	5.5	11.2			
160	27.8	10.5	31.4			
240	54.3	24.1	55.5			
320	73.5	41.8	72.3			
400	83.5	60.3	80.4			
480	87.7	73.4	85.0			
560	90.4	82.3	88.4			
640	92.7	88.2	91.2			
800	96.2	94.9	95.9			
960	98.1	98.3	97.9			
1200	99.4	100	99.4			
1600	100	100	99.6			
2000	100	100	100			

[0058]

また、試料12及び試料13から図5に示す形状の試験片(厚さ2.1mm)を作成するとともに、図5に示すようにコの字状に着磁を行なった。なお、着磁条件を以下の4条件とした。

8 0 0 μ F × 5 0 0 V , 8 0 0 μ F × 8 0 0 V , 8 0 0 μ F × 1 1 0 0 V , 8 0 0 μ F × 1 5 0 0 V

各着磁条件において、図5の一点鎖線上のトータルフラックスを測定した。図6は、一点鎖線上の位置とトータルフラックス(B)との関係を着磁電圧ごとに示したグラフである。

フル着磁に近い着磁電圧が1500Vのときには試料12及び試料13は同等のトータルフラックス(B)を示している。しかし、着磁電圧が500Vの時には試料12は試料13の1.3倍以上のトータルフラックス(B)を有している

。同様に、着磁電圧が800Vの時には試料12は試料13の1.1倍以上のトータルフラックス(B)を有している。また、着磁電圧が500Vの場合、極性が反転すべき3.5mmの位置近傍の試料12及び試料13の曲線を比較すると、前者の傾きに比べて後者の傾きが小さく、ニュートラルゾーンの発生を示唆している。

[0059]

以上の結果より、着磁特性の優れた試料12を用いることにより、ニュートラルゾーンの幅を小さくすることができるため、アクチュエータに優れた動作特性を与えることができる。

[0060]

<第5実施例>

表1に示す組成の原料合金(低R合金及び高R合金)を第1実施例と同様にしてR-T-B系希土類永久磁石を製造した(試料15)。得られたR-T-B系希土類永久磁石について、第1実施例と同様に磁気特性等を測定した。その結果を表14に示す。

[0061]

【表14】

	試料	Ts	d	ρ	Br	HcJ	(BH)max	Hk/HcJ	O ₂	N ₂	С
	D2477	(°C)	[μ m]	[Mg/m ³]	[T]	[kA/m]	$[kJ/m^3]$	[%]	[ppm]	[ppm]	[wt%]
L	15	1060	4.2	7.52	1.441	1074.3	401.9	97.53	790	450	0.088

[0062]

次に、このR-T-B系希土類永久磁石からPc=2.0、1.0、0.5の 試料を作成して、第1実施例と同様に着磁率を測定した。その結果を表15及び 図7に示す。

[0063]

【表15】

着磁	着磁率(%)					
磁界_	Pc=2.0	Pc=1.0	Pc=0.5			
0	0	0	0			
80	10.9	8.5	6.3			
160	30.4	25.9	17.5			
240	52.8	47.6	34.9			
320	69.2	63.1	50.8			
800	95.2	93.3	83.3			
1600	100	99.7	99.2			
2000	100	100	100			

[0064]

表 15 及 0 図 7 に示すように、P c が小さくなるにつれて着磁率は低下する傾向にあるが、240 k A/mの着磁磁界において、P c = 1.0 の着磁率が 35 %以上、P c = 0.5 の着磁率が 30 %以上と低磁界で高い着磁率を示している。また、800 k A/mの着磁磁界において、P c = 1.0 の着磁率が 90 %以上、P c = 0.5 の着磁率が 80 %以上の着磁率を示していることがわかる。

[0065]

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、320kA/m(4kOe)程度の低い着磁磁界での着磁率が向上されるとともに、800kA/m(10kOe)以上の高い着磁磁界における着磁率が向上されたR-T-B系希土類永久磁石を提供する。このような着磁率の高いR-T-B系希土類永久磁石は、多極着磁磁石に用いた場合には、ニュートラルゾーンの幅を狭くすることができる。このようなリング磁石を用いたモータは、高い回転性能を保持することができる。また、着磁率の高い磁石は、材質的に高コストで高磁気特性であるが着磁率の低い磁石に比べて、実際に発生するトータルフラックスが多い場合がある。したがって、本発明は、所定のトータルフラックスを低コストの磁石で実現することができる。または磁石のサイズを小型化することができる。

【図面の簡単な説明】

- 【図1】 第1実施例によるR-T-B系希土類永久磁石の着磁磁界と着磁率の関係(着磁特性曲線)を示すグラフである。
- 【図2】 第2実施例によるR-T-B系希土類永久磁石の着磁磁界と着磁率の関係(着磁特性曲線)を示すグラフである。
- 【図3】 第3実施例によるR-T-B系希土類永久磁石の着磁磁界と着磁率の関係(着磁特性曲線)を示すグラフである。
- 【図4】 第4実施例によるR-T-B系希土類永久磁石の着磁磁界と着磁率の関係(着磁特性曲線)を示すグラフである。
- 【図5】 第4実施例によるR-T-B系希土類永久磁石から作成した試験 片の形状を示す平面図である。
- 【図6】 図5の試験片の一点鎖線上の位置とトータルフラックス(B) との関係を着磁電圧ごとに示したグラフである。
- 【図7】 第5実施例によるR-T-B系希土類永久磁石の着磁磁界と着磁率の関係(着磁特性曲線)を示すグラフである。

【書類名】 図面

【図1】

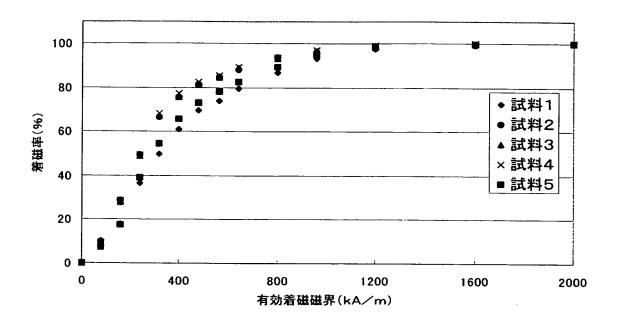
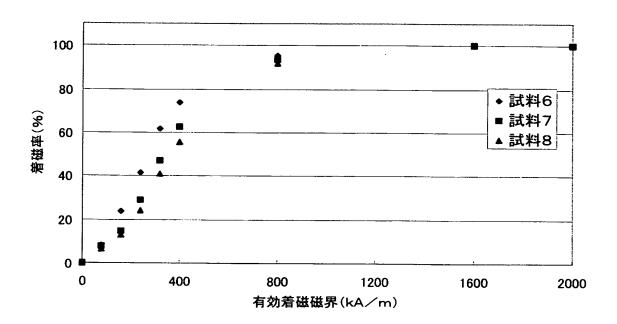
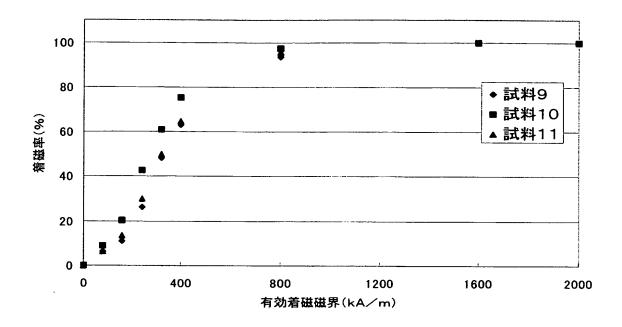


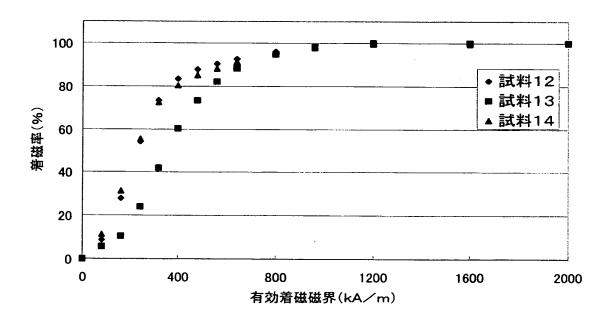
図2】



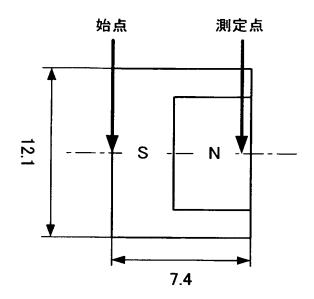
【図3】



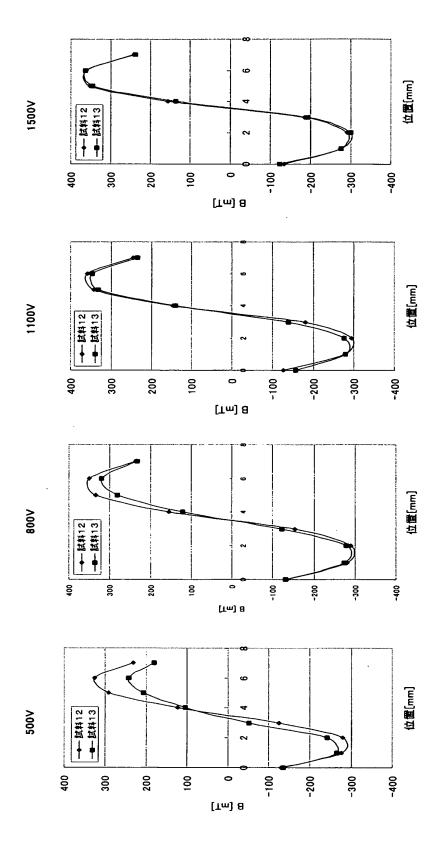
【図4】



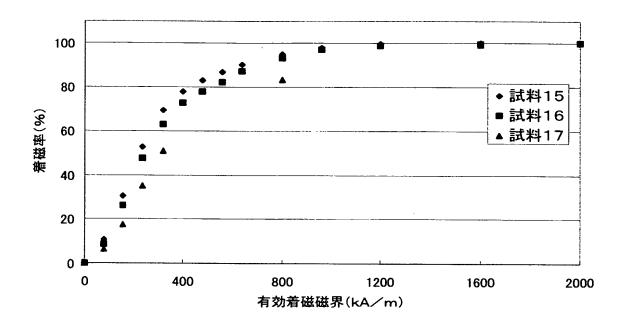
【図5】



【図6】



【図7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低い着磁磁界でより高い着磁率を得るとともに、着磁特性曲線がより 低高磁界側に存在するR-T-B系希土類永久磁石を提供する。

【解決手段】 $R_2T_{14}B$ 相(ただし、RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上、TはFe 又はFe 及びCo を必須とする1種又は2種以上の遷移金属元素)からなる主相と、主相よりRを多く含む粒界相とを備えた焼結体からなり、Pc(パーミアンス係数)が2において、240k A/mの有効磁場(ただし、有効磁場=印加磁場-反磁場)を印加したときのトータルフラックスをf1、800k A/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf2、2000k A/mの有効磁場を印加したときのトータルフラックスをf3とすると、着磁率 a(f1/f3×100)が40%以上、かつ、着磁率b(f1/f3×100)が90%以上であることを特徴とするf1

【選択図】 図1

出願人履歴情報

識別番号

[000003067]

1. 変更年月日 [変更理由]

1990年 8月30日

住所

新規登録 東京都中央区日本橋1丁目13番1号

氏 名 ティーディーケイ株式会社

2. 変更年月日

2003年 6月27日

[変更理由]

名称変更

住 所 名

東京都中央区日本橋1丁目13番1号

TDK株式会社